

# 道路沿道地域におけるナノ粒子の実態把握に関する調査研究

石井克巳 竹内和俊 渡邊剛久 市川有二郎

## 1 はじめに

大気汚染の主要問題として取り組まれてきたSPM（粒径 $10\mu\text{m}$ 以下）は、固定及び移動発生源の各種規制強化等の対策により、2007年度に初めて首都圏全域で環境基準が達成され、その後もほぼ達成を維持している。その一方で、人体への有害性は微細な粒子ほど影響が大きいことが指摘されており、SPMよりも微小なPM<sub>2.5</sub>（粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下）の新たな環境基準が2009年9月に告示された。さらに近年は、より微細なナノサイズの粒子（ナノ粒子：粒径 $50\text{nm}$ 以下）が肺胞を通過して体内器官に沈着し、高い有害性を示すとの報告もあり注目されている。

PM<sub>2.5</sub>については一般局と自排局との差が小さくなってきており、自動車排ガスに関連する様々な規制の効果によるものと考えられているが、ナノ粒子は今のところ沿道でそれほど減少していないとの報告もある<sup>り</sup>。このような状況において、2008～2012年度に県内の幹線道路沿道を対象とし、ナノ粒子の汚染状況を把握するための調査を行った。その結果、夏季、冬季における粒径分布についてデータが得られ、道路沿道においては夜間から早朝にかけて大型ディーゼル車の交通量及び気温の影響が示唆される特徴のあるデータが得られた。ただし、経年的な傾向の把握は不十分であることから、汚染状況の推移の把握と最新排ガス規制の影響の検証等を目的として、引き続き2013年度から3カ年の継続調査を実施した。本稿では2015年度に実施した調査結果を中心に報告する。

## 2 方法

### 2・1 調査地点および期間

調査地点である2つの測定局の位置関係を図1に示す。野田宮崎自排局(以下、自排局という)は道路端からの距離が自排局の中でも短く(6m)、自動車排ガスの影響をより反映したデータが得られると考えら

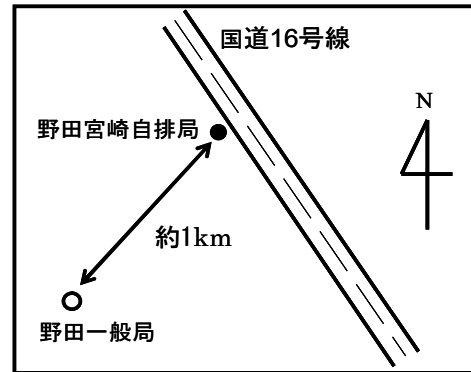


図1 調査実施測定局の位置関係概略

表1 これまでの調査実施期間

年度	時季	測定期間
2009	冬季	2010/1/14 ~2/2
2010	夏季	2010/7/23 ~8/23
2011	冬季	2012/1/12 ~2/8
2012	夏季	2012/7/23 ~8/28
2013	夏季	2013/8/9 ~8/28
	冬季	2014/1/23 ~2/11
2014	夏季	2014/7/28 ~8/13
	冬季	2015/1/29 ~2/16
2015	夏季	2015/7/21 ~8/11
	冬季	2016/1/27 ~2/17

れること、また近隣に後背地と見なされる野田一般局(以下、一般局という)が設置されているため、2009年度より両局で調査を継続して実施した。これまでに調査を実施した期間を表1に示す。2012年度まで冬季と夏季を隔年で1ヶ月程度の調査を実施してきたが、2013年度より経年的なデータを得ることを主眼としたため、冬季と夏季の両季とし、測定期間は半月程度に短縮した。冬季は大気が安定すること、夏季は光化学反応による二次粒子生成が考えられることから粒子濃度が高くなると考えられる。

### 2・2 調査方法

#### 2・2・1 粒径(Dp)ごとの粒子数濃度測定

測定装置 SMPS(Scanning Mobility Particle

Sizer: TSI社製3034, 測定粒径範囲10~487nm, 54ch)を両局に設置し, 粒径分布を1時間値として求めた。ただし, 2014年度冬季については3034の1台が不調だったため代替機としてTSI社製3936(設定測定粒径範囲15~487nm, 49ch)を一般局で使用した。2台のSMPSは自排局設置機を基準とし, 並行測定により一般局の機差補正を行った。

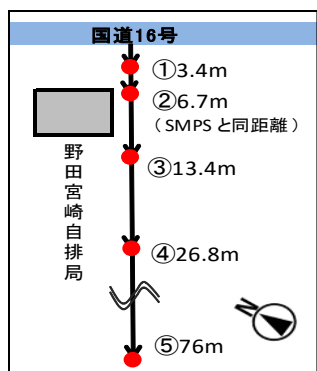


図2 CPC測定地点

### 2・2・2 総粒子数濃度(拡散分布測定)

自排局を中心に図2に示した後背地方向に調査地点を5か所設定した。測定装置はCPC(Condensation Particle Counter: TSI社製3007, 測定粒径範囲10~

1000nm, 1秒ごとの総個

数濃度測定, 1回の測定継続時間4~5時間)を2~4台使用した。SMPSと道路端から同じ距離である地点②を固定測定地点とし, 他地点はCPCの台数により15分ないし30分で地点を移動しながらの測定, もしくは固定測定を行った。測定はSMPS測定を

実施している期間に, 早朝および昼間の時間帯別に各年度各季1回ずつ行い, 2015年度は, 夏季は2015年7月24日(昼間), 7月28日(早朝), 冬季は2016年1月28日(昼間), 2月2日(早朝)に実施した。

## 3 結果

### 3・1 粒径分布

経年的な変化を見るために2009~2015年度調査における粒径分布を図3にまとめて示した。なお, 一部の粒径データについては並行測定による機差が大きくなり, 補正して比較することが困難と考えられたので除外して示した。

全体の傾向として, 自排局の方が一般局よりも粒子数濃度が高く, ディーゼル車排ガスの影響が現れている。自排局ではナノ粒子の粒径域である50nm以下の粒子数濃度が夏季と比較して冬季に特異的に高くなっており, 特に濃度の高かった2011年度冬季は川崎市池上におけるナノ粒子の高濃度観測事例<sup>1)</sup>と近い濃度レベルとなっていた。粒径分布のピークトップは冬季20nm以下であるが, 夏季は20~40nmのブロードな形状となっている。一般局の年度間の変動は比較的少なかった。

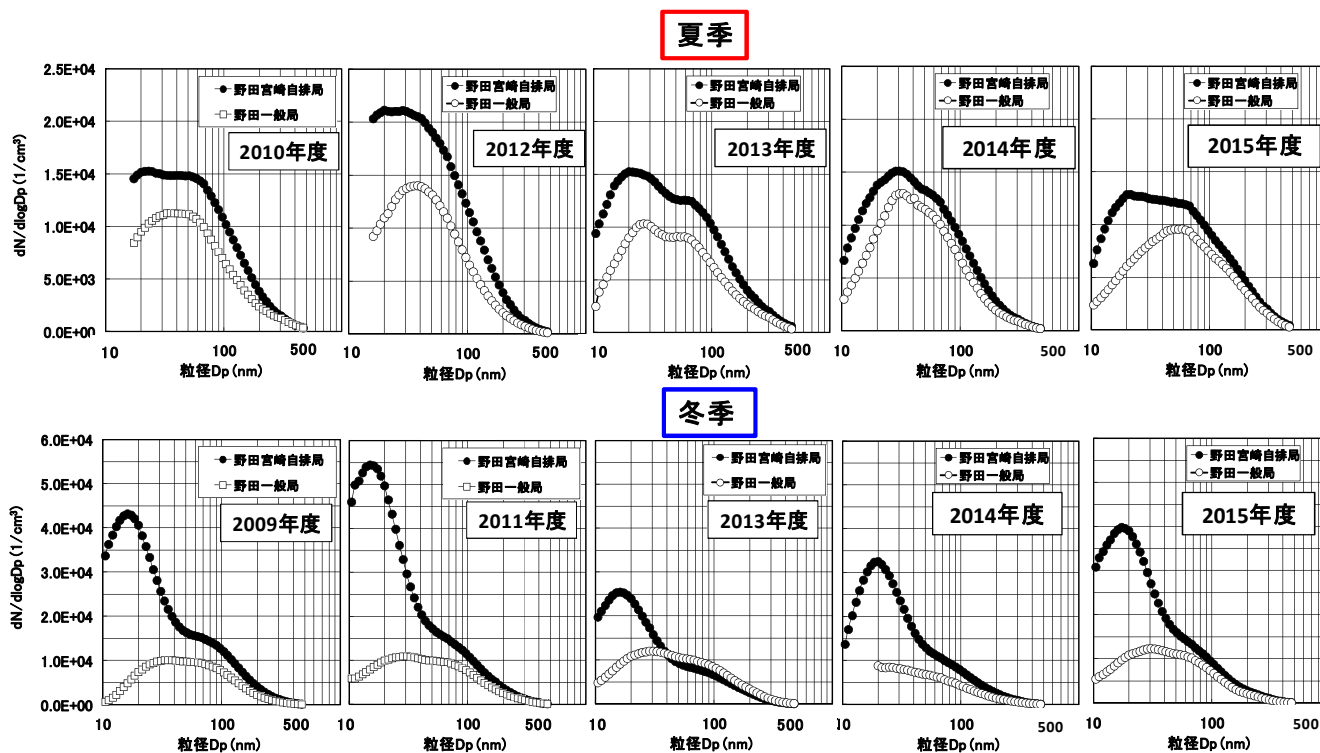


図3 粒径分布(各調査期間平均)

### 3・2 自排局と一般局の粒子数濃度差

ナノ粒子濃度の自動車排ガスからの影響について明確にするため、調査期間中の  $D_p < 50nm$  (夏季は  $17 < D_p < 50nm$ ) の平均総粒子数濃度を算出し、自排局と一般局の差をとって図4に示した。図中には1時間値のばらつきを示すため標準偏差と近似直線(2009年度を  $x=0$ , 2015年度を  $x=6$  と設定)も合わせて示した。なお、2014年度冬季の一般局については  $D_p < 20nm$  以下のデータが得られなかったため、過去の3年間の  $D_p < 20nm$  と  $20nm \leq D_p < 50nm$  の粒子数濃度比から推定した値を使用して算出した。また、比較のためナノ粒子数濃度と比較的相関の見られる  $NO_x$  濃度についても同じ期間で算出し、結果を合わせて示した。

夏季のナノ粒子数濃度差は、近似直線の値を見ると微減の傾向となっていた。 $NO_x$  濃度差はほぼ横ばいであるが、ナノ粒子数濃度差の経年変動と類似した動きになっている。夏季は光化学反応が活発なことや大気の拡散の影響を冬季より受けやすいことから自動車排ガスの直接的な影響が現れにくくなっている可能性もある。

冬季のナノ粒子数濃度差は年度によって変動があり、年度によって上下動が見られる。一方、 $NO_x$  濃度差は明確に経年的な減少傾向が継続しており、最新規制対応車への転換が進んできたことが要因の一つとして考えられる。ナノ粒子数濃度差も、近似直線を引くと傾きが  $NO_x$  濃度差と同程度の減少率

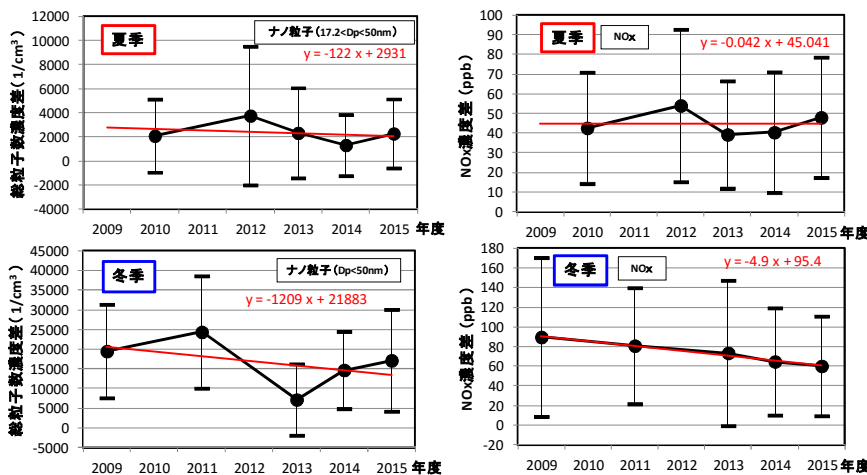


図4 自排局と一般局のナノ粒子数及び  $NO_x$  濃度差の推移 (各年度調査期間平均)

を示した。しかしながら、ナノ粒子数濃度は気象要因の影響を受けやすいため年度によって変動が大きく、 $NO_x$  濃度差のような一律な低減傾向を本調査期間内では明確に判断は出来なかった。

### 3・3 光化学反応の影響

図5に2015年度夏季調査における  $D_p < 50nm$  の総粒子数濃度の時間別時間平均値を、図6に光化学反応の指標となる  $Ox$  濃度と粒子数濃度(一般局:  $D_p = 17.2nm, 138.2nm$ ) の関係を示した。夏季は日中の光化学反応による二次粒子の生成の影響と考えられる一般局の濃度上昇があり、2015年度以外の各年度でも観測された。

$Ox$  濃度と粒子数濃度は  $D_p = 138.2nm$  のように  $100nm \leq D_p$  では正の相関が見られるが、 $D_p = 17.2nm$  のようなナノ粒子領域では、 $Ox$  濃度が上昇するとむしろ濃度が減少していた。それぞれの濃度上昇と下降を詳細に見ると、 $Ox$  とナノ粒子濃度の

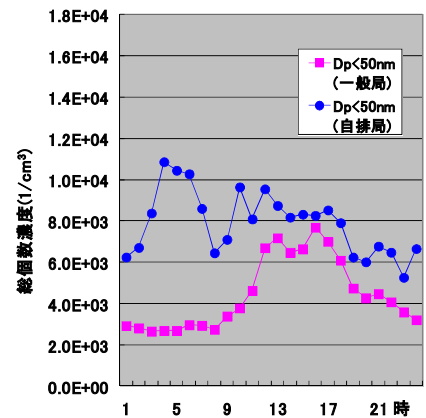


図5 粒子数濃度の時間別平均 (2015年度夏季)

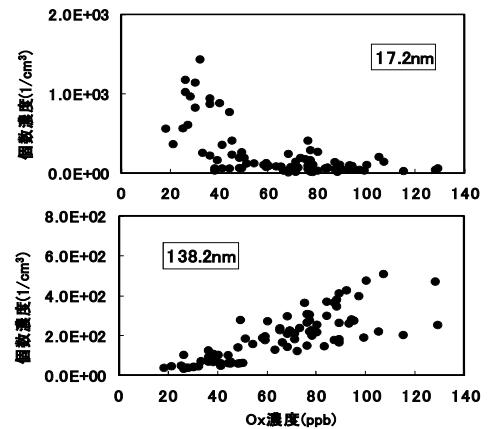


図6 粒子数と  $Ox$  濃度の関係 (2015年度夏季, 11-16時)

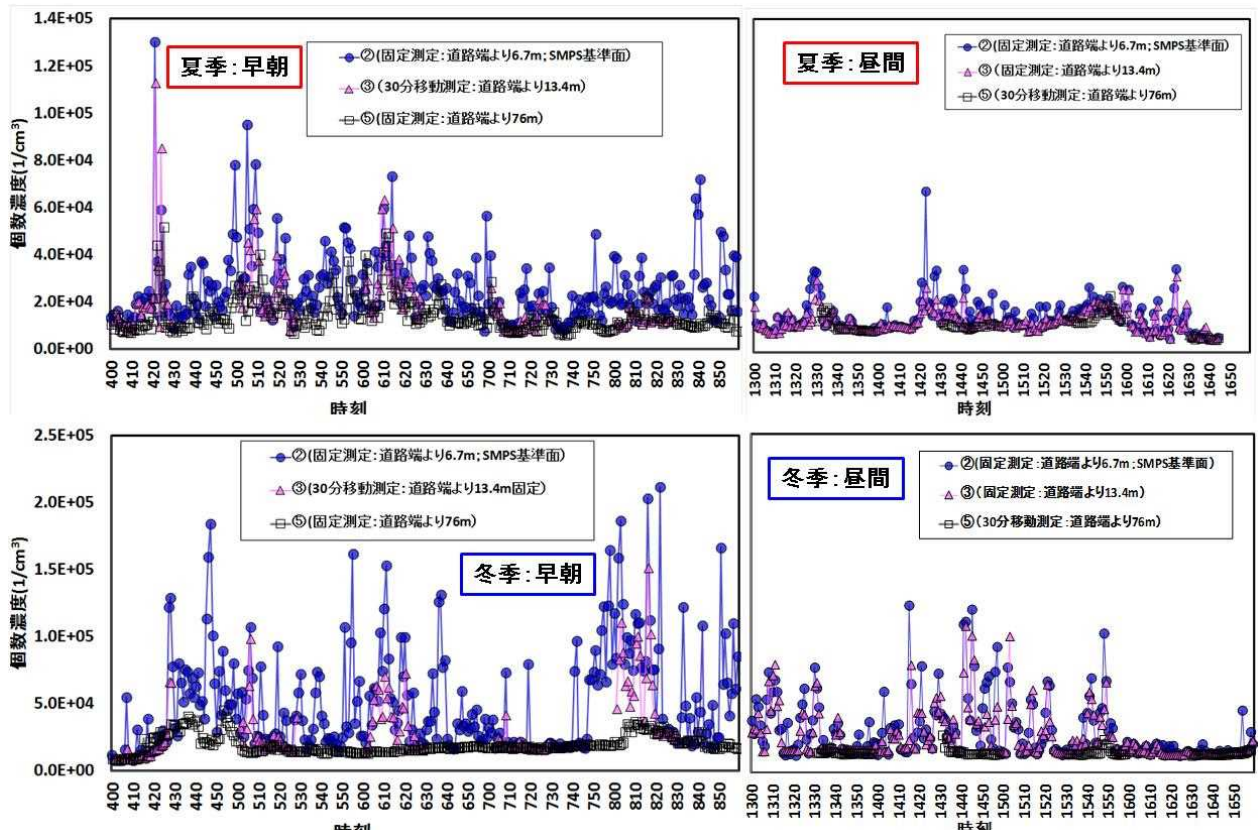


図7 道路沿道から後背地にかけての個数濃度経時変化(2015年度)

上昇と下降のタイミングは一致せず、どちらかが前後することが多かった。このため結果的に  $Ox$  濃度との正の相関のない状況となっていた。

### 3・4 沿道からの拡散

2015年度調査におけるCPC測定で得られた沿道から後背地にかけての総個数濃度変化の例を図7に示す。なお、総個数濃度は1秒ごとに得られるが、1分値に平均化して示した。

夏季の結果は、粒子数濃度はこれまで得られてきた結果と同程度であったが、後背地での濃度上昇がやや目立った。測定時の風速が  $3\text{ m/s}$  を超す時間帯があり、他年度の測定時よりも若干大きく、風向はESEが多く、道路の斜め風下の状況だったことがこの要因として考えられた。

冬季のベースの粒子数濃度が比較的安定し、道路沿道から後背地方向にある程度濃度上昇がみられ、粒子数濃度と合わせてこれまでの得られた結果に類似したパターンであった。ただし、早朝も昼間も途中で後背地側からS系の風向に変わった時間帯が出現し、道路に近い測定点でも濃度上昇が見られなく

なる状況があり、ナノ粒子濃度は風向と風速の詳細な動きの影響を受けていることが示唆された。このため、1時間値の常時監視気象データよりも高時間分解で解析することも有用と思われた。

### 4 まとめ

本事業の3年間の調査により、以前の課題のデータと合わせて夏季冬季それぞれ5年のデータが蓄積された。この間のデータを統合すると  $NOx$  濃度は明確な減少傾向があったが、ナノ粒子は気象等の変動要因の影響が大きく明確な経年的な減少傾向は判断できなかった。拡散調査の結果も考慮すると、ナノ粒子濃度はより詳細な気象状況を合わせて解析する必要もあると考えられた。

引用文献：1) 高橋克行, 長谷川就一, 伏見暁洋, 藤谷雄二, 田邊潔, 小林伸治: 幹線道路沿道における大気中ナノ粒子の粒径分布の長期観測. 第48回大気環境学会講演要旨集, 552 (2007) .